

**DE3027850**

**Title:**  
**Filled thermoplastic resin compositions**

**Abstract:**  
Filled thermoplastic resin compositions are provided wherein the filler component is compatible with and does not deleteriously affect the physical properties of the resin. The filler employed is a particulate, solid sphere which can be pre-treated with a surface active agent prior to being incorporated in the resin. The resin composition can also contain other ingredients such as impact modifiers, glass fillers, and the like.

⑤

Int. Cl. 3:

**C 08 L 69/00**

① **BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND**

C 08 K 7/20

**DEUTSCHES**



**PATENTAMT**

**DE 30 27 850 A 1**

①

# **Offenlegungsschrift 30 27 850**

②

Aktenzeichen:

P 30 27 850.3

③

Anmeldetag:

23. 7. 80

④

Offenlegungstag:

19. 2. 81

⑥

Unionspriorität:

③② ③③ ③①

25. 7. 79 V.St.v.Amerika 60742

⑤④

Bezeichnung:

Füllstoffhaltige thermoplastische Harzmassen

⑦①

Anmelder:

General Electric Co., Schenectady, N.Y. (V.St.A.)

⑦④

Vertreter:

Schüler, H., Dipl.-Chem. Dr. rer.nat., Pat.-Anw., 6000 Frankfurt

⑦②

Erfinder:

Myers, Donald Clifford, Stephentown, N.Y.;  
Wilson, Phillip Steven, Louisville, Ky. (V.St.A.)

**DE 30 27 850 A 1**

Dr. rer. nat. Horst Schüler  
PATENTANWALT

6000 Frankfurt/Main 1, 22. 7. 1980  
Kaiserstrasse 41 Pr/Dr. Sch/We.  
Telefon (0611) 235555  
Telex: 04-16759 mapat d  
Postscheck-Konto: 282420-602 Frankfurt/M.  
Bankkonto: 225/0389  
Deutsche Bank AG, Frankfurt/M.  
8361-8CL-2715

GENERAL ELECTRIC COMPANY  
1 River Road  
Schenectady, N.Y./U.S.A.

Patentansprüche

1. Füllstoffhaltige Polycarbonatmasse mit einem Gemisch aus einem hochmolekularen aromatischen Polycarbonatharz und Cenokügelchen in einer Menge von etwa 2 bis 40 Gew.-% des Gesamtgewichts der Polycarbonatmasse.
2. Masse nach Anspruch 1, gekennzeichnet durch eine Menge an Cenokügelchen von etwa 10 bis 30 Gew.-%.
3. Masse nach Anspruch 1, gekennzeichnet durch feste Kügelchen als Cenokügelchen mit einem spezifischen Gewicht von etwa 2,4, einer Schüttdichte von etwa 1,20 bis 1,28 g/cm<sup>3</sup> (etwa 75 bis 80 lbs/ft<sup>3</sup>), einem mittleren Durchmesser der Masse der Kügelchen von etwa 5 bis 6 µm und einem pH von etwa 3 bis 8.
4. Masse nach Anspruch 1, gekennzeichnet durch ein Polycarbonatharz, das sich von 2,2-Bis(4-hydroxyphenyl)propan ableitet und einen Schmelzfluß von etwa 0,5 bis 20 hat.
5. Masse nach Anspruch 1, gekennzeichnet durch ein die Schlageigenschaften modifizierendes Mittel in einer Menge von etwa 1 bis 5 Gew.-% der Polycarbonatmasse.
6. Masse nach Anspruch 1, gekennzeichnet durch einen Glasfüllstoff in einer Menge von bis zu etwa 20 Gew.-% der Polycarbonatmasse.

130008/0744

- 2 -

7. Masse nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Cenokügelchen ein grenzflächenaktives Mittel in Mengen von bis zu etwa 2 Gew.-% ihres Gewichts enthalten, wobei das grenzflächenaktive Mittel ein Vertreter aus der Gruppe der Silane, Nichtsilan-silicone und/oder Nichtsilicone ist.
8. Masse nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß das grenzflächenaktive Mittel ein Siliconfluid ist.
9. Masse nach den Ansprüchen 1, 3 und 4.
10. Masse nach Anspruch 9, gekennzeichnet durch eine Menge der Cenokügelchen von etwa 10 bis 30 Gew.-%.
11. Masse nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, daß sich das Polycarbonatharz von 2,2-Bis(4-hydroxyphenyl)-propan ableitet.
12. Masse nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, daß sie ein die Schlageigenschaften modifizierendes Mittel in einer Menge von etwa 1 bis 5 Gew.-% der Polycarbonatmasse enthält.
13. Masse nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, daß sie einen Glasfüllstoff in einer Menge von bis zu etwa 20 Gew.-% der Polycarbonatmasse enthält.
14. Masse nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, daß die Cenokügelchen ein grenzflächenaktives Mittel in Mengen von bis zu etwa 2 % ihres Gewichts enthalten, wobei das grenzflächenaktive Mittel ein Vertreter aus der Gruppe der Silane, Nichtsilan-silicone und/oder Nichtsilicone ist.

130008/0744

15. Masse nach Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, daß das grenzflächenaktive Mittel ein Siliconfluid ist.
16. Schaumerzeugnis aus einer thermoplastischen Polycarbonatmasse, die ein Gemisch eines hochmolekularen aromatischen Polycarbonatharzes und von Cenokügelchen in einer Menge von etwa 2 bis 40 Gew.-% der Polycarbonatmasse aufweist.
17. Schaumerzeugnis nach Anspruch 16, dadurch gekennzeichnet, daß die Menge der Cenokügelchen etwa 10 bis 30 Gew.-% ausmacht.
18. Schaumerzeugnis nach Anspruch 16, dadurch gekennzeichnet, daß die Cenokügelchen feste Kügelchen mit einem spezifischen Gewicht von etwa 2,4, einer Schüttdichte von etwa 1,20 bis 1,28 g/cm<sup>3</sup> (etwa 75 bis 80 lbs/ft<sup>3</sup>), einem mittleren Durchmesser der Hauptmasse der Kügelchen von etwa 5 bis 6 µm und einem pH von etwa 3 bis 8 sind.
19. Schaumerzeugnis nach Anspruch 16, dadurch gekennzeichnet, daß sich das Polycarbonatharz von 2,2-Bis(4-hydroxyphenyl)propan ableitet und einen Schmelzfluß von etwa 0,5 bis 20 aufweist.
20. Schaumerzeugnis nach Anspruch 16, dadurch gekennzeichnet, daß es ein die Schlageigenschaften modifizierendes Mittel in einer Menge von etwa 1 bis 5 Gew.-% der Polycarbonatmasse aufweist.
21. Schaumerzeugnis nach Anspruch 16, dadurch gekennzeichnet, daß es einen Glasfüllstoff in einer Menge von bis zu etwa 20 Gew.-% der Polycarbonatmasse aufweist.

130008/0744

BAD ORIGINAL

22. Masse nach Anspruch 16, dadurch gekennzeichnet, daß die Cenokügelchen ein grenzflächenaktives Mittel in Mengen von bis zu etwa 2 % ihres Gewichts enthalten, wobei das grenzflächenaktive Mittel ein Vertreter aus der Gruppe der Silane, Nichtsilan-silicone und/oder Nichtsilicone ist.
23. Masse nach Anspruch 22, dadurch gekennzeichnet, daß das grenzflächenaktive Mittel ein Siliconfluid ist.
24. Cenokügelchen-Zusammensetzung als Füllstoff in thermoplastischen Harzmassen, dadurch gekennzeichnet, daß sie feste Kügelchen mit einem spezifischen Gewicht von etwa 2,4, einer Schüttdichte von etwa 1,20 bis 1,28 g/cm<sup>3</sup> (etwa 75 bis 80 lbs/ft<sup>3</sup>), einem mittleren Durchmesser der Hauptmasse der Kügelchen von etwa 5 bis 6 µm und einem pH von etwa 3 bis 8 sowie ein grenzflächenaktives Mittel aus der Gruppe der Silane, Nichtsilan-silicone und/oder Nichtsilicone aufweist.
25. Zusammensetzung nach Anspruch 24, dadurch gekennzeichnet, daß das grenzflächenaktive Mittel in Mengen von bis zu etwa 2 Gew.-% der Zusammensetzung vorliegt.
26. Zusammensetzung nach Anspruch 24, dadurch gekennzeichnet, daß das grenzflächenaktive Mittel ein Siliconfluid ist.

Dr. rer. nat. Horst Schüler  
PATENTANWALT

6000 Frankfurt/Main 1, 22. 7. 1980  
Kaiserstrasse 41 Pr/Dr. Sch/We.  
Telefon (0611) 235555  
Telex: 04-16 759 mapat d  
Postscheck-Konto: 2824 20-602 Frankfurt/M.  
Bankkonto: 225/0389  
Deutsche Bank AG, Frankfurt/M.  
8361-8CL-2715

GENERAL ELECTRIC COMPANY  
1 River Road  
Schenectady, N.Y./U.S.A.

---

Füllstoffhaltige thermoplastische Harzmassen

---

Die Erfindung bezieht sich auf füllstoffhaltige Polycarbonatmassen mit einem Gemisch eines hochmolekularen aromatischen Polycarbonats und eines teilchenförmigen Füllstoffs.

Polycarbonatpolymere sind ausgezeichnete Formmaterialien, da daraus hergestellte Erzeugnisse hohe Schlagfestigkeit, Zähigkeit, hohe Transparenz, weite Temperaturgrenzen (hohe Schlagfestigkeit unter  $-60^{\circ}\text{C}$  und einen Last-Wärmebeständigkeitswert von  $115^{\circ}\text{C}$  bei Schlag), gute Dimensionsstabilität, hohe Kriechfestigkeit und gute elektrische Eigenschaften und dgl. haben.

Thermoplastische Formmassen, wie Polycarbonate, sind kostspielig herzustellen, und eine der allgemeiner akzeptierten Methoden zur Kostensenkung besteht darin, das Grundharz mit einem verhältnismäßig wenig kostspieligen teilchenförmigen Füllstoff zu füllen. Abgesehen von der Kostensenkung verleihen teilchenförmige Füllstoffe häufig wertvolle Eigenschaften, wie reduzierte Formschrumpfung

130008/0744



und geringere Verwerfung. Teilchenförmige Füllstoffe können auch die Druckfestigkeit, den Elastizitätsmodul aus einem Druckversuch und die Schlagfestigkeit der Harzzusammensetzung verbessern. In manchen Fällen vermag eine höhere Füllstoffmenge die Wärmeleitfähigkeit zu erhöhen, was zu kürzeren Formzyklen führt.

Teilchenförmige Füllstoffe können jedoch ernsthafte, schädliche Einflüsse auf Thermoplastharze, insbesondere aromatische Polycarbonate, haben. Beispielsweise verursachen basische Materialien, wie Nephelincyanit oder viele gebrannte Tone, eine starke Harzverschlechterung und damit ein Abfallen der physikalischen Eigenschaften. In vielen Fällen ist die Schädigung oder der Abbau bei der Formgebung so schwer, daß Testproben wegfallen, wenn sich die Form öffnet. Andere teilchenförmige Füllstoffe, wie Glasperlen aus stark basischem Glas, können auch nicht mit Polycarbonaten verwendet werden, da sie das Harz abbauen. Hohle, dünnwandige Glaskugeln sind auch erprobt worden, versagen aber unter Belastung und führten zu Polycarbonaten mit mäßigen physikalischen Eigenschaften. In jüngerer Zeit wurde vermahlene Flugasche erprobt, aber auch dies führte zu Polycarbonatmassen mit schlechten physikalischen Eigenschaften.

Es wurde nun gefunden, daß ein wirtschaftlicher teilchenförmiger Füllstoff mit hochmolekularen aromatischen Polycarbonatharzen verwendet werden kann, der mit dem Harz kompatibel ist und die gewünschten physikalischen Eigenschaften der sich ergebenden Polycarbonatmasse nicht in schädlicher Weise beeinträchtigt. Der teilchenförmige Füllstoff gemäß der Erfindung ist ein amorphes Alumino-silikatglas, das aus Flugasche gewonnen wird, deren Magnetit-Anteil entfernt worden ist, und die gewöhnlich als Zusatz in Beton verwendet wird. Dieser teilchenförmige Füllstoff umfaßt feste Kügelchen mit einem spezifischen



Gewicht von etwa 2,4, einer Schüttdichte von 1,20 bis 1,28 g/cm<sup>3</sup> (etwa 75 bis 80 lbs/ft<sup>3</sup>), einem mittleren Durchmesser der Hauptmasse der Charge von 5 bis 6 µm mit weniger als 3 Gew.-% mit einem Durchmesser über 10 µm und keine Teilchen über 25 µm, und einem pH von etwa 3 bis 8. Diese teilchenförmigen, festen, kugelförmigen Füllstoffe sind im Handel erhältlich (unter der Handelsbezeichnung Spherefil 10) und werden nachfolgend als Cenokügelchen (cenospheres), ein vom Fachmann verwendeter Begriff, bezeichnet.

Um die erfindungsgemäßen Polycarbonatmassen zu erhalten, werden die Cenokügelchen mit dem Polycarbonatharz in Mengen von etwa 2 bis 40, vorzugsweise 10 bis 30 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht der Polycarbonatmasse, mechanisch gemischt, worauf das Gemisch extrudiert, das Extrudat pelletisiert und die Pellets dann zu Formgegenständen geformt werden können.

Bei der praktischen Durchführung der Erfindung sind die hochmolekularen aromatischen Polycarbonate, die verwendet werden können, Homopolymere und Copolymere und deren Gemische, die eine Intrinsik-Viskosität (I.V.) von 0,40 bis 1,0 dl/g, gemessen in Methylenchlorid bei 25°C, haben und durch Umsetzen eines zweiwertigen Phenols mit einer Carbonat-Vorstufe hergestellt werden.

Typisch für einige verwendbare zweiwertige Phenole sind Bisphenol-A, [2,2-Bis(4-hydroxyphenyl)propan], Bis(4-hydroxyphenyl)methan, 2,2-Bis(4-hydroxy-3-methylphenyl)propan, 4,4-Bis(4-hydroxyphenyl)heptan, 2,2(3,5,3',5'-Tetrachlor-4,4'-dihydroxydiphenyl)propan, 2,2-Bis(3,5,3',5'-tetrabrom-4,4'-dihydroxydiphenyl)propan, (3,3'-Dichlor-4,4'-dihydroxydiphenyl)methan. Andere zweiwertige Phenole

des Bisphenol-Typs stehen auch zur Verfügung, wie in den US-PS'en 2 999 835, 3 028 365 und 3 334 154 offenbart.

Natürlich können auch zwei oder mehrere verschiedene zweiwertige Phenole oder ein Copolymerisat eines zweiwertigen Phenols mit einem Glykol oder mit Polyester mit Hydroxyl- oder Säureendgruppen oder mit einer zweiwertigen Säure eingesetzt werden, für den Fall, daß ein Carbonat-Copolymerisat oder -Interpolymeres anstelle eines Homopolymeren für die Herstellung der erfindungsgemäßen aromatischen Polycarbonate gewünscht wird. Bei der praktischen Durchführung der Erfindung können auch Gemische irgendwelcher der obigen Materialien verwendet werden, um das aromatische Polycarbonat zu liefern.

Die Carbonat-Vorstufe kann entweder ein Carbonylhalogenid, ein Carbonat-ester oder ein Halogenformiat sein. Die verwendbaren Carbonylhalogenide sind Carbonylbromid, Carbonylchlorid und deren Gemische. Typisch für die Carbonat-ester, die verwendet werden können, sind Diphenylcarbonat, Di-(halogenphenyl)carbonate, wie Di-(chlorphenyl)carbonat, Di(bromphenyl)carbonat, Di-(trichlorphenyl)carbonat, Di-(tribromphenyl)carbonat, usw., Di-(alkylphenyl)carbonat, wie Di-(tolyl)carbonat, usw., Di-(naphthyl)carbonat, Di(chlornaphthyl)carbonat, Phenyltolylcarbonat, Chlorphenyl-chlornaphthyl-carbonat, usw., oder deren Gemische. Zu den verwendbaren Halogenformiaten gehören Bishalogenformiate zweiwertiger Phenole (Bischlorformiate von Hydrochinon, usw.) oder Glykole (Bishalogenformiate von Äthylenglykol, Neopentylglykol, Polyäthylenglykol, usw.). Während sich weitere Carbonatvorstufen für den Fachmann ergeben, wird Carbonylchlorid, auch als Phosgen bekannt, bevorzugt.

130008/0744

BAD ORIGINAL

Einbezogen sind auch die polymeren Derivate eines zweiwertigen Phenols, einer Dicarbonsäure und Kohlensäure. Sie sind in der US-PS 3 169 121 offenbart, auf die hiermit Bezug genommen wird.

Die erfindungsgemäßen aromatischen Polycarbonate können unter Einsatz eines Molekulargewichtsregulators, eines Säureakzeptors und eines Katalysators hergestellt werden. Zu den verwendbaren Molekulargewichtsregulatoren gehören einwertige Phenole, wie Phenol, Chroman-I, p-tert.-Butylphenol, p-Bromphenol, primäre und sekundäre Amine usw. Bevorzugt wird Phenol als Molekulargewichtsregulator eingesetzt.

Der Säureakzeptor kann entweder ein organischer oder ein anorganischer Säureakzeptor sein. Ein geeigneter organischer Säureakzeptor ist ein tert.-Amin und umfaßt solche Materialien wie Pyridin, Triäthylamin, Dimethylanilin, Triäthylamin usw. Der anorganische Säureakzeptor kann entweder ein Hydroxid, ein Carbonat, ein Bicarbonat oder ein Phosphat eines Alkali- oder Erdalkalimetalls sein.

Die verwendbaren Katalysatoren können irgendwelche Katalysatoren sein, die die Polymerisation von Bisphenol-A mit Phosgen fördern. Zu geeigneten Katalysatoren gehören tertiäre Amine, wie Triäthylamin, Tripropylamin, N,N-Dimethylanilin, quaternäre Ammoniumverbindungen, wie Tetraäthylammoniumbromid, Cetyltriäthylammoniumbromid, Tetra-n-heptylammoniumjodid, Tetra-n-propylammoniumbromid, Tetramethylammoniumchlorid, Tetramethylammoniumhydroxid, Tetra-n-butylammoniumjodid, Benzyltrimethylammoniumchlorid und quaternäre Phosphoniumverbindungen, wie n-Butyltriphenylphosphoniumbromid und Methyltriphenylphosphoniumbromid.

Einbezogen sind auch verzweigte Polycarbonate, wobei eine polyfunktionelle aromatische Verbindung mit dem zweiwertigen Phenol und Carbonat-Vorstufe zu einem thermoplastischen, statistisch verzweigten Polycarbonat umgesetzt wird.

Die polyfunktionellen aromatischen Verbindungen weisen wenigstens drei funktionelle Gruppen auf, und zwar Carboxyl, Carbonsäureanhydrid, Halogenformyl oder deren Mischungen. Beispiele für diese polyfunktionellen aromatischen Verbindungen sind Trimellithsäureanhydrid, Trimellithsäure, Trimellithyltrichlorid, 4-Chlorformylphthalsäureanhydrid, Pyromellithsäure, Pyromellithsäuredianhydrid, Mellithsäure, Mellithsäureanhydrid, Trimesinsäure, Benzophenontetracarbonsäure, Benzophenontetracarbonsäureanhydrid und dgl. Die bevorzugten polyfunktionellen aromatischen Verbindungen sind Trimellithsäureanhydrid oder Trimellithsäure oder deren Halogenformyl-Derivate.

Ferner sind Gemische linearen Polycarbonats und eines verzweigten Polycarbonats mit umfaßt.

Um die Erfindung noch vollständiger und klarer zu veranschaulichen, sind die folgenden Beispiele gegeben, wobei es sich versteht, daß diese Beispiele nur der Veranschaulichung, nicht der Eingrenzung der Erfindung dienen. In den Beispielen beziehen sich alle Teile und Prozentsätze auf das Gewicht, sofern nicht anders angegeben. Physikalische Eigenschaften der in den folgenden Beispielen erhaltenen Testproben wurden wie folgt bestimmt:

Gekerbte und ungekerbte Izod-Prüfung (NI bzw. UNI)

gemäß ASTM D-256;

Biegefließen (FY) und Biegemodul (FM) gemäß ASTM D-790;

Streckgrenze (TY), Bruch unter Zug (TB) und Zugdehnung (TE) gemäß ASTM D-638;

Schlagzugversuch (TI) gemäß ASTM D-1822;

Formbeständigkeit unter Last (DTUL) gemäß ASTM D-648;

Schmelzfluß (MF) gemäß ASTM D-1238, Zustand 0;

doppelt geöffnete, ungekerbte Izod-Prüfung (DG) gemäß ASTM D-256\*

\* Die Arbeitsweise für diesen Test ist die gleiche wie die für die ungekerbte Izod-Prüfung, mit der Ausnahme, daß die eingesetzte Testprobe ein an jedem Ende mit einer Öffnung versehener Stab ist, um eine Schweißlinie in der Mitte des Stabs zu bilden.

#### Beispiel 1

100 Teile eines aromatischen Polycarbonats, hergestellt aus 2,2-Bis(4-hydroxyphenyl)propan (Bisphenol-A) und Phosgen in Gegenwart eines Säureakzeptors und eines Molekulargewichtsregulators und mit einer Intrinsik-Viskosität (I.V.) von etwa 0,507 wurden mit Cenokügelchen gemischt, indem die Bestandteile in einem Labor-Trommelmischer zusammengemischt wurden. Dieses Gemisch wurde dann einem Extruder zugeführt, der bei etwa 265°C betrieben wurde, und das Extrudat wurde zu Pellets zerkleinert. Die Pellets wurden dann bei etwa 315°C zu Testproben von etwa 127 x 12,7 x 12,7 mm (5 x 0,5 x 1/8") spritzgußgeformt, und diese Proben wurden dann den weiteren Tests unterworfen.

#### Beispiel 2

Nach der Arbeitsweise des Beispiels 1 wurden Polycarbonatmassen mit 5 bis 60 Gew.-% Cenokügelchen (CK) extrudiert und zu Pellets geformt. Die Intrinsik-Viskosität der Pellets wurde erhalten, um ihren Einfluß auf das Grund-

130008/0744

harz bei den verschiedenen Cenokügelchen-Konzentrationen zu bestimmen. Die erzielten Ergebnisse zeigt die folgende Tabelle I:

Tabelle I

Intrinsi'-Viskosität von Cenokügelchen enthaltendem  
Polycarbonat

Cenokügelchen (CK) (Gew.-%)	Intrinsik-Viskosität von Polycarbonat-Pellets (dl/g)
0	0,507
5	0,449
10	0,451
15	0,433
20	0,425
30	0,420

Wie aus Tabelle I zu ersehen, ergab sich nur ein geringer Abfall der Intrinsik-Viskosität bei steigender Menge des Cenokügelchen-Gehalts auf 30 Gew.-%. Oberhalb 30 Gew.-% Cenokügelchen-Gehalt ergab sich ein beträchtlicher Abfall der I.V. sowie ein Rutschen der Extruderschnecke. Bei 40 Gew.-% Cenokügelchen konnte mit Pumpen extrudiert werden, aber bei 60 Gew.-% Cenokügelchen hatte das den Düsenkopf verlassende Material die Beschaffenheit von nassem Sand.

### Beispiel 3

Die Arbeitsweise des Beispiels 2 wurde wiederholt, mit der Ausnahme, daß ein handelsübliches Polyäthylen ("LB-742") und eine handelsübliche Dreiblock-Kautschukverbindung [Styrol-b-(Äthylen-Butylen)-b-Styrol], "Kraton G-1651") auch zusammen mit den Cenokügelchen eingearbeitet wurde. Testproben wurden erhalten, wie in Beispiel 1 beschrieben,



und die physikalischen Eigenschaften dieser Proben wurden bestimmt. Die Ergebnisse sind in der folgenden Tabelle II aufgeführt, worin "CK" die Cenokügelchen der Erfindung, "PÄ" das Polyäthylen, "DBK" die Dreiblock-Kautschukverbindung und "Kontrolle" die Polycarbonatprobe des Beispiels 1 ohne Füllstoff bezeichnet.



Tabelle II  
Physikalische Eigenschaften von füllstoffhaltigen Polycarbonaten

Füllstoff (Gew.-%)		NI (3,175 mm; 0,125")	UNI (3,175 mm; 0,125")	NI (6,350 mm; 0,250")	FY (x 10 <sup>-3</sup> )	FM (x 10 <sup>-3</sup> )	TY (x 10 <sup>-3</sup> )	TB (x 10 <sup>-3</sup> )	TE (%)	DTUL bei 18,2 bar (264 psi) °C (°F)		MF
CK	PÄ DEK											
5	-	3.1	>40.0	1.75	14.5	378	8.88	9.78	82.0	130,6(267)		9.61
10	-	2.7	>40.0	1.69	14.5	385	8.87	8.47	60.0	128,9(264)		9.85
15	-	2.0	>40.0	1.17	14.4	408	8.86	8.28	58.0	129,4(265)		10.32
20	-	1.5	>37.0	1.17	14.5	444	8.77	7.47	45.7	126,1(259)		10.63
30	-	0.8	11.3	0.74	14.5	484	0	8.98	4.3	128,9(264)		10.63
40	-	0.6	4.2	0.53	13.4	586	0	8.98	2.0	127,8(262)		15.16
5	2	11.3	>40.0	2.97	13.6	361	8.78	9.53	76.3	130,6(267)		9.38
15	2	3.4	>40.0	2.08	13.6	402	8.21	8.19	63.3	128,3(263)		10.19
30	2	0.87	10.8	0.74	13.9	484	0	8.24	5.0	127,2(261)		9.97
5	4	12.0	>40.0	4.04	13.0	346	8.50	10.5	96.7	130,6(267)		9.30
15	4	4.2	>40.0	2.51	13.0	382	7.99	8.3	68.3	127,8(262)		9.85
30	4	0.87	14.1	0.84	13.1	473	0	6.41	5.0	127,8(262)		10.88
5	5	13.3	>40.0	6.91	12.9	344	8.36	9.48	83.3	129,4(265)		9.22
10	5	9.3	>40.0	--	12.9	338	--	--	--	129,4(265)		--
15	5	5.9	>40.0	2.5	13.0	370	7.95	8.36	73.0	128,3(263)		9.30
20	5	1.2	>36.7	--	13.2	392	--	--	--	124,4(256)		14.41
40	5	0.2	3.25	--	--	--	--	--	--	--		--
Kontrolle		16.0	>40.0	1.66	13.5	340	9.0	9.5	110.0	132,2(270)		9.22

130008/0744

3027850

1  
14  
1

Die Ergebnisse der Tabelle II zeigen, daß die Änderungen der physikalischen Eigenschaften der füllstoffhaltigen Polycarbonatmassen im wesentlichen linear mit steigendem CK-Füllstoffgehalt sind und daß die Anwesenheit von Polyäthylen (PÄ) oder der Dreiblock-Kautschukverbindung (DBK) geringen Einfluß auf die Schlageigenschaften bei höheren Füllstoffkonzentrationen hat. Das Biegefließen und die Zugfestigkeit nahmen bei höheren PÄ- und DBK-Konzentrationen ebenso ab wie die DTUL-Werte. Der Schmelzfluß andererseits stieg mit steigenden PÄ- und DBK-Konzentrationen.

#### Beispiel 4

Nach der Arbeitsweise des Beispiels 2 wurde statistisches, wiederverwendetes Polycarbonat-Harz eingesetzt, um Pellets aus Polycarbonatmassen mit 20 Gew.-% Cenokügelchen und einem Schmelzfluß von 8,46 zu erhalten. Die Pellets wurden neun weitere Male ohne Trocknen extrudiert. Die I.V. der Pellets aus jeder erneuten Extrusion wurde erhalten, und Testproben der jeweils erneut extrudierten Pellets wurden geformt und dem ungekerbten Schlagzähigkeitstest unterworfen. Die erzielten Ergebnisse sind in Tabelle III wiedergegeben.

130008/0744

BAD ORIGINAL

Tabelle III

Einfluß wiederholter Extrusion füllstoffhaltiger Polycarbonate aus wiederverwendetem Harz

	UNI 3,175 mm (0,125")	Pellet grundmolare Viscosität tätzahl (dl/g)
anfänglich wiedervermahlen	> 40,3	0,490
1. Wiederholungs-Extrusion	11,33	0,476
3. Wiederholungs-Extrusion	27,33	0,459
6. Wiederholungs-Extrusion	28,4	0,451
8. Wiederholungs-Extrusion	26,4	0,446
10. Wiederholungs-Extrusion	25,47	0,451

Die Ergebnisse der Tabelle III zeigen, daß die Schlag-eigenschaften mit der ersten Wiederholungs-Extrusion abfielen, dann aber bei der dritten Wiederholungs-Extrusion anstiegen. Dieser Anstieg beruht vermutlich auf einer gleichförmigen Verteilung des Cenokügelchen-Füllstoffs im Harz und verbessert sich augenscheinlich nicht wesentlich bei weiteren Wiederholungs-Extrusionen.

#### Beispiel 5

Die Arbeitsweise des Beispiels 4 wurde wiederholt, mit der Ausnahme, daß Testproben nach nur einer Wiederholungs-Extrusion erhalten wurden, und die physikalischen Eigenschaften dieser Testproben wurden mit solchen von Testproben verglichen, die aus einem ursprünglichen Polycarbonatgrundharz mit 20 Gew.-% Cenokügelchen-Füllstoff erhalten worden waren. Die Vergleichsergebnisse zeigt die folgende Tabelle IV:

Tabelle IV

Physikalische Eigenschaften füllstoffhaltiger, wiederholt extrudierter und ursprünglicher Polycarbonate im Vergleich

	wiederholt extrudiertes Polycarbonat	ursprünglich extrudiertes Polycarbonat
NI (3,175 mm; 0,125")	1,2	1,32
UNI (3,175 mm; 0,125")	15,2	> 40,0
NI (6,350 mm; 0,250")	1,87	1,09
FY ( $\times 10^{-3}$ )	15,1	14,7
FM ( $\times 10^{-3}$ )	436,0	402,0
TY ( $\times 10^{-3}$ )	0	8,72
TB ( $\times 10^{-3}$ )	8,87	7,99
TE (%)	6,0	58,0
TI	19,8	68,8
DTUL bei 18,2 bar (264 psi) (°C)	131,3	135,0

Aus den Ergebnissen der obigen Tabelle IV ist zu ersehen, daß die ungekerbte Izod-Schlagzähigkeit des ursprünglichen Harzes wesentlich größer ist als für das wiederholt extrudierte Harz, daß aber die übrigen Schlagwerte nahezu vergleichbar sind, wie die DTUL-Werte. Mit Ausnahme des Bruchs bei Zug sind die Zugeigenschaften des ursprünglichen Harzes besser als solche des wiederextrudierten Harzes. Dennoch sind die Eigenschaften des füllstoffhaltigen, wiederholt extrudierten Harzes insgesamt für die kommerzielle Verwendung recht akzeptabel.

130008/0744

## Beispiel 6

Zwei weitere handelsübliche Füllstoffe (Fillite und Vial-Flugasche-Puzzolan) wurden verwendet, um Testproben nach der Arbeitsweise des Beispiels 2 zu erhalten. Die zusätzlich verwendeten Füllstoffmaterialien sind weiter wie folgt zu identifizieren:

Fillite: Flugasche-Cenohohlkugeln,

Vial-Flugasche-Puzzolan: eine Flugasche mit einem mittleren Teilchendurchmesser von etwa 40  $\mu\text{m}$ , deren magnetische Teilchen entfernt worden sind; im allgemeinen als Zementzusatz verwendet und das Ausgangsprodukt, aus dem die erfindungsgemäßen Cenokügelchen erhalten werden.

Außerdem wurde auch dritter Füllstoff eingesetzt, der eine nicht verfeinerte Flugasche war, d.h. Flugasche, erhalten aus den Abgasschloten eines kohlebefeuernden Brenners.

Die physikalischen Eigenschaften von Polycarbonat-Testproben, die diese Füllstoffe in verschiedenen Konzentrationen enthielten, wurden bestimmt und sind in der folgenden Tabelle V aufgeführt:

Tabelle V

Physikalische Eigenschaften verschiedener Füllstoffe bei ver-  
schieden Konzentrationen in Polycarbonaten

Füllstoffe: Füllstoff Gew.-%:	nicht-reduzierte Flugasche				Fillite			Puzzolan
	10	20	20 (a)	10 (b)	10	20	20 (a)	
NI (3,175 mm, 0,125")	0,87	0,33	0,53	1,33	1,33	0,97	0,93	1,23
UNI (3,175 mm, 0,125")	14,0	2,13	3,75	11,26	10,53	4,27	4,40	20,76
NI (6,350 mm, 0,250")	--	--	--	--	--	--	--	1,02
DGI (3,175 mm, 0,125")	--	--	--	--	--	--	--	16,53
FY (x 10 <sup>-3</sup> )	14,4	14,4	15,7	13,1	13,4	11,9	15,4	14,1
FM (x 10 <sup>-3</sup> )	393,0	478,0	959,0	368,0	416,0	493,0	793,0	403,0
TY (x 10 <sup>-3</sup> )	--	--	--	--	--	--	--	0
TB (x 10 <sup>-3</sup> )	--	--	--	--	--	--	--	7,65
TE (%)	--	--	--	--	--	--	--	10,0
DTUL bei 18,2 bar (264 psi) °C(°F)	--	--	--	--	128,4 (263,3)	132,5 (270,5)	136,5 (277,7)	--

(a) enthält 20 Gew.-% handelsübliche Glasfaser

(b) enthält 5 Gew.-% DBK (Kraton G-1651).

130008/0744

Vergleicht man die Ergebnisse der Tabelle V mit denen der Tabelle II, ist zu erkennen, daß die erfindungsgemäßen Cenokügelchen erheblich bessere Schlagfestigkeiten und Zugeigenschaften als andere handelsübliche Füllstoffmaterialien zeigen.

#### Beispiel 7

Die Arbeitsweise des Beispiels 2 wurde wiederholt, wobei die erhaltenen Testproben Cenokügelchen-Füllstoff in Konzentrationen von 15 bis 30 Gew.-% enthielten, um die physikalischen Eigenschaften zur Herstellung gewerblich annehmbarer Polycarbonatmassen zu optimieren. Die erzielten Ergebnisse sind in der folgenden Tabelle VI aufgeführt:



Tabelle VI

Optimierung von Polycarbonatmassen bei verschiedenen Cenokügelchen-  
Füllstoff-Konzentrationen

	Gew.-% Cenokügelchen-Füllstoff							*
	0	15	20	25	30	30	30	
NI (3,175 mm, 0,125")	16,0	1,53	1,33	1,2	0,8	0,8	0,8	0,8
UNI (3,175 mm, 0,125")	40,0	37,8	40,0	26,3	16,7	16,7	13,5	13,5
NI (6,350 mm, 0,250")	1,66	1,33	1,08	0,87	0,67	0,67	0,67	0,67
DGI (3,175 mm, 0,125")	--	26,7	24,8	18,2	10,7	10,7	10,6	10,6
FY ( $\times 10^{-3}$ )	13,2	13,5	13,6	13,8	13,8	13,8	13,5	13,5
FM ( $\times 10^{-3}$ )	317,0	377,0	401,0	439,0	471,0	471,0	479,0	479,0
TY ( $\times 10^{-3}$ )	9,31	8,82	8,87	8,89	0	0	0	0
TB ( $\times 10^{-3}$ )	9,72	7,14	7,16	0	9,1	9,1	8,61	8,61
TE (%)	121,0	39,0	47,0	9,0	6,0	6,0	5,0	5,0
DTUL bei 18,2 bar								
(264 psi) °C (°F)	132,2	135,0	132,8	133,3	134,4	134,4	128,9	128,9
	(270,0)	(275,0)	(271,0)	(272,0)	(274,0)	(274,0)	(264,0)	(264,0)
MF	9,22	9,38	9,47	9,94	9,85	9,85	10,46	10,46
TI	424,0	105,0	52,0	27,0	14,0	14,0	14,0	14,0

\* Enthält 0,3 Gew.-% Formtrennmittel (Pentaerythrityltetratearat), bezogen auf das Gewicht des Polycarbonatharzes

## Beispiel 8

Die Arbeitsweise des Beispiels 2 wurde wiederholt, um Testproben zu erhalten, die den erfindungsgemäßen Cenokügelchen-Füllstoff enthielten. Außerdem wurden verschiedene handelsübliche, die Schlageigenschaften modifizierende Mittel in das Grundharz eingearbeitet, um ihren Einfluß auf die Füllstoffmasse zu bestimmen. Die erzielten Ergebnisse sind in der folgenden Tabelle VII aufgeführt, wobei der Gehalt an Cenokügelchen-Füllstoff bei 10 Gew.-% gehalten wurde, "Kontrolle" bezeichnet die füllstoffhaltige Polycarbonatmasse ohne ein die Schlageigenschaften modifizierendes Mittel, und die Menge an handelsüblichem, die Schlageigenschaften modifizierendem Mittel bezog sich auf das füllstoffhaltige Harz, die Abkürzungen haben folgende Bedeutungen:

TBR :	ein Styrol-b-(Äthylen-Butylen)-b-Styrol-Copolymerisat (wie in Beispiel 3; im Handel unter "Kraton G-1651");
MBS:	ein Methylmethacrylat-Butadien-Styrol-Pfropfcopolymerisat (im Handel unter "Blendex IIIS");
PÄ:	ein Polyäthylen (wie in Beispiel 3; im Handel unter "USI LB-742");
PP:	ein Polypropylen (im Handel unter "Profax 6601");
BPA/DMS:	ein Bisphenol-A/Dimethylsiloxan-Blockcopolymerisat (im Handel unter "Copel").

Tabelle VII

Einfluß von die Schlageigenschaften modifizierenden  
Mitteln auf füllstoffhaltige Polycarbonate

die Schlageigenschaften modifizierendes						
Mittel (Gew.-%)						
	TBR	MBS	PÄ	PP	BPA/DMS	
	<u>Kontrolle (5)</u>	<u>(5)</u>	<u>(3)</u>	<u>(3)</u>	<u>(4)</u>	
NI (3,175 mm; 0,125")	2,1	9,3	7,3	8,2	2,9	11,3
UNI (3,175 mm; 0,125")	40,0	40,0	38,9	40,0	22,0	40,0
FY ( $\times 10^{-3}$ )	14,6	12,9	13,1	13,5	13,6	13,4
FM ( $\times 10^{-3}$ )	371,0	338,0	351,0	352,0	355,0	358,0
DTUL bei 18,2 bar (264 psi)						
°C (°F)	128,3 (263,0)	129,4 (265,0)	127,8 (262,0)	128,3 (263,0)	126,7 (260,0)	128,3 (263,0)
Gardner- Schlagtest (2,45 cm/ 0,454 kp bzw. in./lbs.)	288,0	312,0	300,0	288,0	300,0	312,0
MF	9,52	9,58	7,46	9,36	10,63	9,58

Die Ergebnisse der obigen Tabelle VII zeigen, daß die Wirksamkeit eines die Schlageigenschaften modifizierenden Mittels von dem speziell verwendeten modifizierenden Mittel abzuhängen scheint. Beispielsweise erhöhte das die Schlageigenschaften modifizierende Mittel BPA/DMS die Izod-Kerbschlagzähigkeit von 2,1 auf 11,3, während PP diesen Wert nur um 0,8 erhöhte. Der Einfluß unterschiedlicher Konzentrationen an die Schlageigenschaften modifizierendem Mittel wird erkennbar durch Vergleich der PÄ-Ergebnisse in der obigen Tabelle VII mit denen der Tabelle II, wo PÄ zu 2 und 4 Gew.-% eingesetzt wurde, wobei aber die CK-

130008/0744

Werte höhere Konzentrationen einschlossen als in den Testproben der Tabelle VII. Dieser Vergleich scheint anzudeuten, daß der Gehalt an Cenokügelchen-Füllstoff und die Schlageigenschaften modifizierenden Mittels sowie die Art dieses Mittels zusammen die Schlageigenschaften der gefüllten Polycarbonatharze beeinflussen.

#### Beispiel 9

Die Arbeitsweise des Beispiels 8 wurde wiederholt, um Testproben zu erhalten, die einen verstärkenden Glasfüllstoff und unterschiedliche Gehalte an die Schlageigenschaften modifizierenden Mitteln enthielten, in denen aber der Gehalt an Cenokügelchen-Füllstoff wieder bei 10 Gew.-% gehalten wurde. Die erhaltenen Testproben wurden verschieden lange bei 140°C wärmegealtert und dann dem Zugschlagfestigkeitstest unterworfen. Die erzielten Ergebnisse sind in der folgenden Tabelle VIII wiedergegeben, wobei "Kontrolle" die Cenokügelchen-haltige Polycarbonatmasse ohne die Schlageigenschaften modifizierendes Mittel bezeichnet.

Tabelle VIII  
Zugschlagfestigkeitsdaten für hinsichtlich der Schlageigenschaften  
modifizierte, füllstoffhaltige Polycarbonate, wärmegealtert bei 140°C

		Stunden Wärmealterung									
modifizierendes		0	256	500	1000	1500	2000	3000	4000	5000	
Mittel (Gew.-%)											
Kontrolle		67,6	56,0	63,1	68	50,4	53,6	37,8	48,0	33	
Glasfüllstoff (10)		26,2	20,9	18,7	29	35,7	30,6	44,6	28,3	18	
MBS (5)		133,0	56,6	56,6	55	46,1	34,0	31,4	8,62	--	
PÄ (3)		188,0	104,0	102,0	66	72,6	50,8	10,7	3,82	--	
PP (3)		177,0	81,0	54,7	43	48,9	34,4	19,8	6,36	--	
BPA/DMS (4)		196,0	110,0	131,0	121	124,5	74,5	60,8	50,0	33	
DBK (5)		183,0	96,4	72,3	52	15,1	8,77	4,74	2,57	0	

130008/0744

Wie die Ergebnisse der Tabelle VIII zeigen, behielt die Kontrolle ohne die Schlageigenschaften modifizierendes Mittel mehr als die Hälfte ihrer Schlagfestigkeit, selbst nach 5000-stündiger Alterung, und nur die das BPA/DMS enthaltenden Proben behielten überhaupt merklich meßbare Schlageigenschaften über diesen Alterungszeitraum hinweg. Der Zusatz von Glasfasern zur Kontrolle bei einem Gehalt von 10 Gew.-% führte zu einer anfänglichen Steigerung der Schlagfestigkeit, aber nach 5000-stündigem Altern war die Schlagfestigkeit dieser Probe niedriger als die der Kontrolle.

#### Beispiel 10

Nach der Arbeitsweise des Beispiels 8 wurden bezüglich der Schlagfestigkeit modifizierte Testproben unter Verwendung zusätzlicher die Schlageigenschaften modifizierender Mittel erhalten. Die modifizierenden Mittel wurden in einer Menge von 4,2 Teilen pro 100 Teile (Tph) des Grundharzes eingesetzt und das Grundharz mit Cenokügelchen in Konzentrationen von 10 und 20 Gew.-% gefüllt. Die erzielten Testergebnisse sind in der folgenden Tabelle IX aufgeführt, worin die zusätzlichen, handelsüblichen, die Schlageigenschaften modifizierenden Mittel, die verwendet wurden, wie folgt bezeichnet sind:

- AR: eine handelsübliche Acrylkautschukverbindung ("7709 XP" der Röhm & Haas);
- PÄ/C: eine handelsübliche Polyäthylenverbindung ("Chemplex 5602");
- PP/R: eine handelsübliche kautschukmodifizierte Polypropylenverbindung ("Rexene PPX 0398");
- RMPP: ein handelsübliches kautschukmodifiziertes Polypropylen ("PX 8202" der Gulf Corp.);

- ÄPDM: ein gesättigter Äthylen/Propylen-Kautschuk (erhältlich unter "Epcar 306G-8" von der B.F. Goodrich Co.);
- MP: 4-Methylpenten-1-Copolymerisat (erhältlich unter der Produktbezeichnung "DX-830" der Mitsui Chemical Co.).



Tabelle IX

Die Schlageigenschaften modifizierende Mittel bei 4,2 T<sub>PH</sub> in mit 10 und 20 Gew.-%  
Cenokügelchen gefüllten Polycarbonatmassen

Schlag- mod. M.	Kontrolle		TBR		BPA/TMS		PÄ		MBS		PÄ/C		PP/R		AR		RMPP		EPDM		MP	
	10	20	10	20	10	20	10	20	10	20	10	20	10	20	10	20	10	20	10	20	10	20
Gew.-%CK																						
NI (3,175mm) (0.125")	2.13	1.07	8.40	1.07	8.13	2.4	5.73	1.33	4.27	2.0	7.07	1.87	2.93	1.2	3.33	1.2	2.53	1.0	2.93	--	2.67	1.0
UNI (mm) (0.125")	>40	28.1	>40	36.8	>40	>40	>40	31.9	>40	39.7	>40	39.6	>40	27.7	>40	27.6	>40	27.9	>40	--	>40	21.6
(6,350)																						
NI (mm) (0.250")	1.72	0.99	3.1	0.96	3.1	1.67	2.48	1.1	2.13	1.37	2.58	1.37	2.38	0.85	1.79	0.96	1.76	0.92	2.34	--	1.72	0.93
DGI (mm) (0.125")	37.1	20.2	22.6	13.8	7.14	10.8	3.39	4.58	32.4	20.5	30.9	18.3	3.5	4.72	6.92	11.5	10.98	11.6	15.31	--	3.08	6.84
FY (x 10 <sup>-3</sup> )	14.5	15.0	13.4	14.2	13.5	12.9	13.5	13.6	13.7	13.6	13.5	13.5	13.4	13.5	13.5	13.6	13.3	13.6	13.1	--	13.7	14.2
FM (x 10 <sup>-3</sup> )	393	438	364	415	367	419	365	405	362	402	359	395	369	401	367	393	367	387	350	--	369	398
TY (x 10 <sup>-3</sup> )	8.5	8.90	8.12	8.46	8.08	7.56	8.18	8.19	8.23	8.06	8.15	8.12	8.31	8.32	8.30	8.42	8.35	8.43	8.21	--	8.56	8.76
TB (x 10 <sup>-3</sup> )	8.75	7.04	8.53	6.78	9.14	7.38	9.38	7.08	8.32	7.46	8.53	7.46	9.42	6.64	8.45	6.72	9.15	6.78	9.24	--	7.46	6.76
TE (%)	27	25	29	37.7	31.5	56	34	47.7	26	54.3	27.5	55.7	34	18	31	22.3	33	34.3	34	--	20.5	15.7
DTUL °C (°F) 18.2 bar (264psi)	131,1 268	127,6 261,7	129,4 265	128,2 262,7	128,2 262,8	128,2 262,8	129,2 267,3	129,2 267,3	128,9 264	130,7 267,3	130,6 267,1	131,7 269,1	131,9 269,5	130,4 266,4	131,7 269,1	128,7 263,6	131,1 268	128,8 263,9	130,6 267	--	130,6 267	126 258.8

130008/0744

Aus den in der obigen Tabelle IX aufgeführten Ergebnissen ergibt sich, daß bei 10 gew.-%igem Füllstoffgehalt annehmbare Schlageigenschaften erhalten werden, unabhängig von den verwendeten, die Schlageigenschaften modifizierenden Mitteln, daß aber bei etwa 20 Gew.-% Füllstoffgehalt der Einfluß eines die Schlageigenschaften modifizierenden Mittels geringfügig wird.

#### Beispiel 11

Der Schmelzfluß von Polycarbonatharzen ist indirekt mit deren Molekulargewichten verknüpft, d.h., je höher der Schmelzfluß ist, um so niedriger ist das Molekulargewicht. Nach der Arbeitsweise des Beispiels 2 wurden Testproben aus Polycarbonatmassen unter Verwendung von Polycarbonatharzen mit verschiedenen Schmelzflußwerten und unterschiedlichen Cenokügelchen-Füllstoffkonzentrationen erhalten und den Schlagtests unterzogen. Die erhaltenen Ergebnisse zeigt die folgende Tabelle X:

130008/0744

Tabelle X  
Einfluß des Grundharzes und Füllstoff-Polycarbonatmassen auf  
den Schmelzfluß

Schmelzfluß des Grundharzes		15,38			9,85			5,29			1,69		
Gew.-% CK		5	15	30	5	15	30	5	15	30	5	15	30
NI (3,175 mm;													
0,125")		1,66	1,32	0,72	3,06	1,53	0,80	2,13	1,86	1,2	4,87	2,05	1,0
UNI (3,175 mm;													
0,125")		40,0	40,0	11,2	40,0	37,8	16,7	40,0	40,0	18,7	40,0	40,0	21,8
NI (6,350 mm;													
0,250")		1,34	1,07	0,67	1,75	1,33	0,67	1,68	1,48	0,97	1,85	1,51	9,32
FY (x 10 <sup>-3</sup> )		14,9	14,7	14,3	14,5	13,5	13,8	14,5	14,4	14,0	14,3	14,2	13,9
FM (x 10 <sup>-3</sup> )		380,0	419,0	504,0	378,0	377,0	471,0	350,0	397,0	478,0	359,0	393,0	408,0
TY (x 10 <sup>-3</sup> )		9,06	8,61	8,09	8,88	8,82	0	9,0	8,55	8,09	9,09	8,73	8,26
TE (%)		57,0	52,0	6,0	82,0	39,0	6,0	77,0	58,0	28,0	78,0	60,0	45,0
Schmelzfluß													
der füllstoff-													
haltigen Masse													
		14,68	15,53	23,53	9,7	9,38	9,85	5,7	6,21	10,96	2,81	3,21	5,25

130008/0744

3027850

Die Ergebnisse der obigen Tabelle X zeigen, daß die Schlag-eigenschaften füllstoffhaltiger Polycarbonatmassen mit steigendem Molekulargewicht des Grundharzes zunahmen.

#### Beispiel 12

Der Einfluß der Verwendung eines herkömmlichen verstärkenden Füllstoffs mit den erfindungsgemäßen füllstoffhaltigen Polycarbonatmassen wurde durch Einarbeiten handelsüblicher Glasfasern in Testproben aus Polycarbonatmassen, hergestellt nach der Arbeitsweise des Beispiels 2, mit der Ausnahme, daß das verwendete Grundharz andere Schmelzflußwerte hatte, bestimmt. Alle Testproben enthielten 9 Gew.-% Glasfasern, deren Schlageigenschaften mit den gleichen Testproben verglichen wurden, die so modifiziert waren, daß sie 5 Gew.-% Cenokügelchen-Füllstoff enthielten, wobei die Glasfaser- und Cenokügelchen-Konzentrationen auf das Gewicht der Polycarbonatmassen bezogen sind. Die erzielten Ergebnisse sind in Tabelle XI aufgeführt:

Tabelle XI

Einfluß des Cenokügelchen-Füllstoffs auf Glas als  
füllstoffenthaltende Polycarbonatmassen

Schmelzfluß der Grundharze				
	<u>9,85*</u>	<u>15,38</u>	<u>9,85</u>	<u>5,29</u>
NI (3,175				
mm bzw.	1,83	1,73	1,79	3,67
0,125")	0,91	1,84	2,45	3,33
mit 5 % CK				
UNI (3,175				
mm bzw.	23,3	29,9	33,3	40,0
0,125")	7,3	20,9	32,8	32,8
mit 5% CK				
FY ( $\times 10^{-3}$ )	16,5	15,9	16,4	15,4
mit 5 % CK	16,8	15,4	15,3	15,2
FM ( $\times 10^{-3}$ )	552,0	533,0	565,0	493,0
mit 5 % CK	579,0	554,0	541,0	537,0
DTUL bei	135,5	134	135,5	135,5
18,2 bar	(275,9)	(273,2)	(275,9)	(275,9)
(264 psi)	132	132,5	134	136,5
°C (°F)	(269,6)	(270,5)	(273,2)	(277,7)
mit 5 % CK				

\* enthielt 0,75 Tph des in der US-PS 3 940 336 offenbarten flammwidrigen Zusatzes.

Die Ergebnisse in Tabelle XI zeigen, daß die erfindungsge-  
mäßigen Cenokügelchen verstärkende Glasfasern enthaltenden  
Polycarbonatmassen ohne schädlichen Einfluß auf die

physikalischen Eigenschaften dieser Massen zugesetzt werden können.

### Beispiel 13

Die Arbeitsweise des Beispiels 12 wurde wiederholt, mit der Ausnahme, daß das eingesetzte Grundharz in allen Fällen das gleiche war und die Menge der Glasfasern und der Cenokügelchen-Füllstoffgehalt variiert wurde. Außerdem wurden einige Proben so modifiziert, daß sie handelsübliche DBK-Schlagmodifizierungsmittel, wie in Beispiel 8 genannt, enthielten. Die erzielten Ergebnisse sind in der folgenden Tabelle XII aufgeführt:

Tabelle XII  
Schlageigenschaften von Cenokügelchen und Glasfasern als Füllstoffe  
enthaltenden Polycarbonatmassen

Gew.-%	10,0	0	0	10,0	10,0	10,0	20,0	0	0	20,0	20,0
Glasfasern	10,0	0	0	10,0	10,0	10,0	20,0	0	0	20,0	20,0
Gew.-% CK	0	10,0	10,0	10,0	10,0	10,0	0	20,0	20,0	20,0	20,0
Gew.-% DBK	0	0	5,0	0	5,0	5,0	0	0	5,0	0	5,0
NI (3,175 mm;											
0,125")	1,8	2,13	9,33	2,13	3,33	2,0	0,93	1,20	0,93	1,21	
UNI (3,175 mm;											
0,125")	33,3	40,0	40,0	40,0	21,9	19,0	18,7	37,6	5,73	6,8 <sup>3</sup>	
FY (x 10 <sup>-3</sup> )	16,4	14,6	12,9	14,7	13,4	19,0	14,9	13,2	18,3	18,6 <sup>4</sup>	
FM (x 10 <sup>-3</sup> )	565,0	371,0	338,0	583,0	530,0	800,0	434,0	393,0	941,0	953,0	
DTUL bei 18,2											
bar (264 psi)											
°C (°F)	135,6	128,3	129,4	137,8	136,7	146,1	127,2	124,4	136,7	134,4	
	(276,0)	(263,0)	(265,0)	(280,0)	(278,0)	(295,0)	(261,0)	(256,0)	(278,0)	(274,0)	

130008/0744

3027850



Aus den Ergebnissen der obigen Tabelle XII ist zu ersehen, daß der Zusatz von Glasfasern zu Cenokügelchen als Füllstoff enthaltenden Polycarbonatmassen wenig oder keinen Einfluß auf die Schlagwerte hatte, aber zu beträchtlicher Steigerung der Biegeeigenschaften und der Formbeständigkeits-temperatur führte. Das Einarbeiten eines die Schlageigenschaften modifizierenden Mittels in die Polycarbonatmassen führte zu verbesserten Schlageigenschaften, hatte aber geringen oder keinen Einfluß auf die Biegeeigenschaften und die Formbeständigkeitstemperatur.

#### Beispiel 14

Nach der Arbeitsweise des Beispiels 2 wurden Testproben erhalten, mit der Ausnahme, daß die Menge der als Füllstoff eingearbeiteten Cenokügelchen variiert wurde. Der Spiralfluß der Testproben wurde bestimmt, indem die Proben durch eine rechtwinklige Spiralform mit einem Durchmesser von etwa 6,35 mm (0,25") geführt wurden, wobei die Temperatur der Schmelze konstant bei 299°C (570°F) gehalten wurde. Die erzielten Ergebnisse sind in der folgenden Tabelle XIII aufgeführt:

Tabelle XIII  
Spiralfluß von Cenokügelchen als Füllstoff enthaltenden  
Polycarbonatmassen

Einspritzdruck (bar bzw. psi)	34,5 (500)			68,9 (1000)			103,4 (1500)			89,6 (1300*)		
	0	15	30	0	15	30	0	15	30	0	15	30
Gew.-% CK	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
durchschnittli- ches Fließen (cm bzw. Zoll)	34,1 (13,42)	36,98 (14,56)	41,99 (16,53)	52,88 (20,82)	52,63 (20,72)	56,64 (23,48)	65,89 (25,94)	66,24 (26,08)	62,38 (24,56)	62,38 (24,56)	62,38 (24,56)	62,38 (24,56)
Fließsteigerung in %	—	8,50	23,17	—	—	12,78	—	—	—	—	—	13,7

\* Die Spirale wurde gefüllt (74,93 cm; 29,5") bei 103,4 bar (1500 psi), daher wurde der Druck auf 89,6 bar (1300 psi) reduziert.

130008/0744

3027850

Wie die Ergebnisse der Tabelle XIII zeigen, werden die Fließeigenschaften der Cenokügelchen als Füllstoff enthaltenen Polycarbonatmassen im allgemeinen verstärkt, aber der Prozentsatz der Steigerung der Fließeigenschaften fällt mit steigendem Einspritzdruck.

Diese Ergebnisse zeigen ferner, daß Cenokügelchen als Füllstoff enthaltende Polycarbonatmassen außergewöhnlich gute Fließeigenschaften für Formgebungsvorgänge zeigen, die typischerweise Drücke mit den in Tabelle XIII gezeigten Werten anwenden.

#### Beispiel 15

Die physikalischen Eigenschaften von spritzschaumgeformten Testproben der Polycarbonatmassen wurden ebenfalls bestimmt. Um die geschäumten Formproben zu erhalten, wurden Pellets nach der Arbeitsweise des Beispiels 2 hergestellt, mit der Ausnahme, daß der Gehalt an Cenokügelchen-Füllstoff variiert wurde. Unter Verwendung einer herkömmlichen Spritzgußmaschine wurden diese Pellets dann zusammen mit einem handelsüblichen Blähmittelkonzentrat (im Handel unter "FLC-95"), zu 5 Gew.-% der Polycarbonatmassen eingesetzt, spritzgußgeformt. Geschäumte Teststäbe mit den Abmessungen 0,635 x 1,27 x 6,35 cm (1/4" x 1/2" x 2,5") wurden erhalten und ihre physikalischen Eigenschaften bestimmt. Die Ergebnisse zeigt Tabelle XIV.

Tabelle XIV

Physikalische Eigenschaften von geschäumten Polycarbonat-  
massen

<u>Physikalische Eigenschaften</u>	<u>Gew.-% des CK-Füllstoffs in der Schaumformprobe</u>		
	<u>10</u>	<u>20</u>	<u>30</u>
UNI (3,175 mm 0,125")	12,1	5,02	3,40
Durchschnittsge- wicht von 10 Mu- sterformstäben (g)	51,31	43,60	48,45
spezifisches Gewicht	1,002	0,844	0,946

Die Ergebnisse der obigen Tabelle XIV zeigen, daß Schaumerzeugnisse aus Polycarbonatmassen erhalten werden können, die Cenokügelchen enthalten, die annehmbare physikalische Eigenschaften aufweisen. Diese Schaumerzeugnisse hatten eine gleichförmige Zellstruktur und eine glatte Oberfläche.

#### Beispiel 16

Die Arbeitsweise des Beispiels 15 wurde wiederholt, mit der Ausnahme, daß handelsübliche, die Schlageigenschaften modifizierende Mittel, wie in den Beispielen 8 und 10 genannt, in die Testproben bei einer Konzentration von 4,2 Tph des Grundharzes eingearbeitet wurden. Die Teststäbe wurden wie in Beispiel 15 erhalten und maßen 0,635 x 1,27 x 12,7 cm (1/4" x 1/2" x 5"), und ihre physikalischen Eigenschaften wurden bestimmt. Die erzielten Ergebnisse sind in Tabelle XV wiedergegeben, wobei die Schlagwerte unter Verwendung des toten Stabendes bestimmt wurden, d.h. des Stabendes, das von der Öffnung am weitesten weg ist, und das Durchschnittsgewicht be-

zieht sich auf 10 Probenformstäbe.

Tabelle XV

Hinsichtlich der Schlageigenschaften modifizierte, geschäumte und geformte Polycarbonatmassen

Gew.-% CK in der geschäumten Probe	10		20	
	UNI (3,175 mm 0,125")	durchschn. Gew. (g)	UNI (0,375 mm 0,125")	durchschn. Gew. (g)
<u>Schlageigenschaften</u>				
<u>modifizierendes</u>				
<u>Mittel</u>				
kein	7,64	8,20	2,93	8,47
DBK	9,56	8,34	4,01	10,4
BPA/DMS	13,2	8,51	7,64	10,7
PÄ	8,10	8,55	4,74	10,1
MBS	9,99	8,38	4,63	8,49
AR	11,99	8,91	5,0	8,56
PÄ/C	11,13	9,14	4,74	9,91
PP/R	11,46	9,40	5,47	11,3
RMPP	11,46	9,37	5,47	11,3
ÄPDM	11,33	9,50	--	--
MP	10,67	10,2	5,8	12,1

Wie die Ergebnisse der Tabelle XV zeigen, führt das Einarbeiten von die Schlageigenschaften modifizierenden Mitteln in Cenokügelchen als Füllstoffenthaltende Polycarbonatharze zu verbesserten physikalischen Eigenschaften der Schaumformteile, die letztlich auch eine glattere Oberfläche hatten als füllstoffhaltige Massen ohne die Schlageigenschaften modifizierende Mittel.

#### Beispiel 17

In diesem Beispiel wurden die erfindungsgemäßen Cenokügelchen zuerst mit verschiedenen handelsüblichen grenz-

130008/0744

flächenaktiven Mitteln behandelt, die allgemein in die drei folgenden Grundgruppen eingeordnet wurden:

Gruppe A: Grenzflächenaktive Silanmittel

- A-143 - ( $\gamma$ )-Chlorpropyl-trimethoxysilan (Union Carbide Corp.)
- A-151 - Vinyltriäthoxysilan (Union Carbide Corp.)
- A-153 - Phenyltriäthoxysilan (Union Carbide Corp.)
- A-162 - Methyltriäthoxysilan (Union Carbide Corp.)
- A-164 - Dimethyldiäthoxysilan (Union Carbide Corp.)
- A-172 - Vinyltris(2-methoxyäthoxy)silan (Union Carbide Corp.)
- A-174 - ( $\gamma$ )-Methacryloxy-propyltrimethoxysilan (Union Carbide Corp.)
- A-186 - ( $\beta$ )-(3-4-Epoxycyclohexyl)äthyl-trimethoxysilan (Union Carbide Corp.)
- A-187 - ( $\gamma$ )-Glycidoxypropyl-trimethoxysilan (Union Carbide Corp.)
- A-1100- ( $\gamma$ )-Aminopropyltriäthoxysilan (Union Carbide Corp.)
- Y-9078- funktionelles Carbamat-Silan (Union Carbide Corp.)
- Y-9187- n-Octyltriäthoxysilan (Union Carbide Corp.)
- Z-6040- ( $\gamma$ )-Glycidoxypropyltrimethoxysilan (Dow Corning Corp.)
- S3076S -Silan-sulfonylazid (Hercules Incorporated)  
(50%ig aktive Lösung von S3076S-Silan in Methylenchlorid, die Emulgatoren enthält)

Gruppe B: Grenzflächenaktive Nichtsilan-Siliconmittel

- VT - Vinyltetramer (Methylvinylcyclotetrasiloxan)  
(General Electric Company)
- MHSF - Methylhydrogensilicon , (General Electric Company,  
flüssig Rhodersill Company, Union Carbide Corp.)

R-555 - 70/30 Diphenyl-/Dimethylsiloxan- (General Electric fluid, teilweise mit Endgruppen versehen Comp...)

Gruppe C: Grenzflächenaktive Nichtsilan-Mittel

MO - Mineralöl (Abfuhrmittelqualität) (laxative grade)  
PIB - Polyisobutylene ("Indopol L-14", Amoco Chemical Co.)  
PPT - Propylentetramer (WR-105A, Arco Chemical Co.)  
PETN - Pentaerythritoltetranonat("Rheolube" LP-3600)  
ADGC - Allyldiglykolcarbonat (Pittsburgh Plate Glass Co.)  
n-BA - n-Butylacrylat

Die verwendeten Cenokügelchen stammten alle aus einer einzigen 227 kg (500 lbs)-Menge und wurden oberflächenbehandelt, wie sie aus dem Faß kamen, indem 4,54 kg (10 lbs) Cenokügelchen in einen 8 Quart-Patterson-Kelley-Doppelschalen-Flüssigkeits/Feststoff-Mischer gebracht und der Mischer und der Intensivierstab 5 min betrieben wurden, bevor das grenzflächenaktive Mittel zugesetzt wurde, um irgendwelche vorhandenen Klumpen aufzubrechen und für die Behandlung ein gleichförmiges Material zu erhalten.

Die grenzflächenaktiven Silanmittel (Gruppe A) wurden mit einem gleichen Volumen 50/50-Methanol/Wasser-Lösung vor der Zugabe verdünnt, ausgenommen für S3076S, das mit einem gleichen Volumen Methylenchlorid verdünnt wurde. Die anderen grenzflächenaktiven Mittel (der Gruppen B und C) wurden zugesetzt, wie erhalten.

Jedes der grenzflächenaktiven Mittel (ausgenommen A-164/n-BA-Kombination) wurde den Cenokügelchen langsam durch den Intensivierstab zugesetzt, und das anfallende Gemisch wurde 5 min gemischt, nachdem das letzte Mittel zugesetzt worden war, um gleichförmige Verteilung zu gewährleisten.

130008/0744

Die so behandelten Cenokügelchen wurden dann in einen Papier/Harz-Beutel entleert und bei 120°C über Nacht unmittelbar vor der Verwendung getrocknet. Das Mittel A-164 wurde den Cenokügelchen zugesetzt, die dann wie üblich getrocknet wurden, aber das hochflüchtige und riechende n-Butylacrylat-Monomer wurde den Cenokügelchen später während des Zusammenstellens ohne Starter zugesetzt.

Die physikalischen Eigenschaften der erhaltenen Formproben finden sich nachfolgend in den Tabellen XVI-XX, worin die Konzentration des eingesetzten grenzflächenaktiven Mittels auf die Menge an eingesetzten Cenokügelchen bezogen ist, in jedem Falle bei 20 Gew.-% des aromatischen Polycarbonats gehalten, wobei "Kontrolle" eine nur ofengetrocknete Cenokügelchen enthaltende Probe bezeichnet.



Tabelle XVI

Physikalische Eigenschaften von Polycarbonatmassen, die mit grenzflächenaktiven Silanmitteln (Gruppe A) behandelte Cenokügelchen enthalten

Physikalische Eigenschaften									
Grenzflächenakti- ves Mittel (Gew.-%)	NI (3,175 mm 0,125")	UNI (3,175 mm 0,125")	FY (x 10 <sup>-3</sup> )	FM <sub>-3</sub> (x 10 <sup>-3</sup> )	TY <sup>-3</sup> (x 10 <sup>-3</sup> )	TB (x 10 <sup>-3</sup> )	TE (%)	DTUL bei 18,2 bar (264 psi) OC (F)	Pellet IV (dl/g)
Kontrolle	1,0	>40,0	14,6	401	9,170	7,280	46,0	56,3(133,4)	0,484
A-143 (1%)	1,13	31,0	14,4	442	8,360	6,810	19,0	54,8(130,7)	0,487
A-151 (1%)	1,93	>40,0	14,2	427	8,300	7,480	43,7	55,8(132,4)	0,491
A-151 (2%)	2,0	39,34	13,8	406	8,180	7,180	34,3	56,3(133,4)	0,489
A-153 (1%)	1,13	>40,0	14,3	420	8,500	7,340	47,7	55,5(131,9)	0,479
A-162 (1%)	1,40	>40,0	13,8	396	8,180	7,620	46,0	55,6(132,1)	0,485
A-164 (1%)	2,36	>40,0	13,5	423	7,510	7,540	57,3	56,1(132,9)	0,489
A-172 (1%)	1,47	>40,0	14,5	421	8,490	7,300	38,0	55,6(132,1)	0,492
A-172 (2%)	1,73	>40,0	14,0	403	8,270	7,730	55,3	56,6(133,9)	0,484
A-174 (1%)	1,16	34,1	14,8	439	8,550	7,070	38,3	55,8(132,4)	0,490
A-186 (1%)	1,61	>40,0	14,7	438	8,230	7,250	39,0	55,2(131,4)	0,495
A-186 (2%)	1,73	>40,0	14,6	411	8,430	7,030	35,0	56,8(134,2)	0,489
A-187 (1%)	1,11	32,1	14,5	423	8,840	6,990	22,3	55,3(131,6)	0,488
A-1100 (1%)	1,05	21,0	14,4	446	8,550	6,800	13,0	55,6(132,0)	0,483

130008/0744

3027850

Tabelle XVI (Fortsetzung)

Physikalische Eigenschaften

Grenzflächenakti- ves Mittel (Gew.-%)	NI (3,175 mm, 0,125")	UNI (3,175 mm, 0,125")	FY (x 10 <sup>-3</sup> )	FM <sup>-3</sup> (x 10 <sup>-3</sup> )	TY <sup>-3</sup> (x 10 <sup>-3</sup> )	TB <sup>-3</sup> (x 10 <sup>-3</sup> )	TE (%)	DTUL bei 18,2 bar (264 psi) O <sub>C</sub> (°F)	Pellet IV (dl/g)
Y-9078 (1%)	1,0	27,3	15,2	428	9,22	7,13	21,7	56,1 (133,0)	0,490
Y-9078 (2%)	0,87	22,2	15,4	438	9,26	7,23	33,0	55,5 (131,9)	0,484
Y-9187 (1%)	2,47	>40,0	13,0	439	7,78	7,15	50,7	54,8 (130,7)	0,486
Z-6040 (1%)	1,09	32,0	14,9	425	8,99	7,06	26,7	55,7 (132,3)	0,485
S3076S (1%)	0,99	24,5	14,9	435	8,99	6,97	12,3	56,7 (134,1)	0,491
A-186 (1%)									-
A-1100 (1%)	1,69	37,3	14,1	434	8,33	6,87	22,7	56,4 (133,6)	0,483
A-186 (2%)									44
A-1100 (1%)	1,72	36,4	14,4	403	8,65	7,02	21,0	56,9 (134,4)	0,492
A-187 (1%)									-
A-1100 (1%)	1,28	36,7	14,5	423	8,62	6,95	34,7	56,2 (133,2)	0,489

130008/0744

3027850

Tabelle XVII

Physikalische Eigenschaften von Polycarbonatmassen, die  
mit grenzflächenaktiven Nichtsilan-Siliconmitteln  
(Gruppe B) behandelte Cenokügelchen enthalten

physikalische Eigenschaften	grenzflächenaktives Mittel (Gew.-%)			
	Kontrolle	VT (1%)	MHSF (1%)	R-555 (1%)
NI (3,175 mm; 0,125")	1,0	2,73	2,33	2,13
UNI (3,175 mm; 0,125")	>40,0	>40,0	>40,0	>40,0
FY ( $\times 10^{-3}$ )	14,6	13,2	13,2	13,3
FM ( $\times 10^{-3}$ )	401,0	406,0	401,0	403,0
TY ( $\times 10^{-3}$ )	9,17	7,53	7,61	7,42
TB ( $\times 10^{-3}$ )	7,28	8,15	8,49	7,99
TE (%)	46,0	67,0	73,0	67,0
DTUL bei 18,2 bar (264 psi) (°C)	133,4	132,9	133,8	135,6
Pellets IV (dl/g)	0,484	0,489	0,495	0,484

130008/0744

Tabelle XVIII

Physikalische Eigenschaften von Polycarbonatmassen, die mit grenzflächenaktiven Nichtsiliconmitteln (Gruppe C) behandelte Cenokügelchen enthalten

physikalische Eigenschaften	grenzflächenaktives Mittel (Gew.-%)					
	Kontrolle	MO (1%)	PIB (1%)	PPT (1%)	PETN (1%)	ADGC (1%)
NI (3,175 mm; 0,125")	1,0	1,07	1,0	1,07	1,0	1,2
UNI (3,175 mm; 0,125")	>40,0	34,0	21,4	27,2	37,47	32,5
FY ( $\times 10^{-3}$ )	14,6	14,8	14,8	14,7	14,7	14,9
FM ( $\times 10^{-3}$ )	401,0	418,0	462,0	455,0	421,0	443,0
TY ( $\times 10^{-3}$ )	9,17	9,1	8,88	8,78	9,04	8,71
TB ( $\times 10^{-3}$ )	7,28	7,09	6,9	6,88	7,11	6,96
TE (%)	46,0	20,3	12,0	21,7	30,3	31,3
DTUL bei 18,2 bar (264 psi)						
(°C)	133,4	131,2	128,7	130,8	131,1	129,9
Pellet IV (dl/g)	0,484	0,480	0,487	0,486	0,483	0,485

130008/0744

3027850

Tabelle XIX

Physikalische Eigenschaften von Polycarbonatmassen, die mit Kombinationen grenzflächenaktiver Mittel behandelte Cenokügelchen enthalten

physikalische Eigenschaften	Kombinationen grenzflächenaktiver Mittel (Gew.-%)			
	A-151 (1%)*	n-BA (1%) A-151(1%)	A-164 (1%)*	PIB (1%) A-164 (3/4%)
NI (3,175 mm; 0,125")	1,93	1,73	2,36	2,16
UNI (3,175 mm; 0,125")	>40,0	>40,0	>40,0	>40,0
FY ( $\times 10^{-3}$ )	14,2	13,8	13,5	13,5
FM ( $\times 10^{-3}$ )	427,0	415,0	423,0	416,0
TY ( $\times 10^{-3}$ )	8,3	8,01	7,51	7,73
TB ( $\times 10^{-3}$ )	7,48	7,4	7,54	7,84
TE (%)	43,7	49,3	57,3	59,0
DTUL bei 18,2 bar (264 psi) (°C)	132,4	132,5	132,9	132,6
Pellet IV (dl/g)	0,491	0,486	0,489	0,491

\* Daten aus Tabelle XVI nur zu Vergleichszwecken

Tabelle XX

Unterschiede der physikalischen Eigenschaften von Polycarbonatmassen, die Cenokügelchen "wie erhalten" enthalten, und von solchen, die gemischte und getrocknete Cenokügelchen enthalten

<u>physikalische Eigenschaften</u>	<u>Cenokügelchen (20 Gew.-%)</u>	
	<u>wie erhalten</u>	<u>gemischt, ge- trocknet</u>
NI (3,175 mm; 0,125")	1,06	1,0
UNI (3,175 mm; 0,125")	30,5	>40,0
FY ( $\times 10^{-3}$ )	14,8	14,6
FM ( $\times 10^{-3}$ )	443,0	401,0
TY ( $\times 10^{-3}$ )	8,88	9,17
TB ( $\times 10^{-3}$ )	7,12	7,28
TE (%)	42,0	46,0
DTUL bei 18,2 bar (264 psi) (°C)	131,1	133,4
Pellet IV (dl/g)	0,485	0,484

Aus den obigen Ergebnissen der Tabellen XVI bis XX ist zu ersehen, daß grenzflächenaktive Silanmittel (Gruppe A) die physikalischen Eigenschaften von Polycarbonatmassen im allgemeinen nicht nachteilig beeinflussen, und solche, die aliphatische funktionelle Gruppen enthalten, die bedeutendste Steigerung der Schlagfestigkeit ergaben; z.B. Tabelle XVI, A-151, A-153, A-162, A-164, A-172, A-186, Y-9187. Während einige dieser grenzflächenaktiven Silanmittel zu einer erheblichen Erhöhung des Biegemodul der Polycarbonatmasse führten, ergab sich auch eine Abnahme der ungekerbten Izod-Schlageigenschaften und der Zugdehnung; z.B. Tabelle XVI, A-143, A-151, A-174, A-187, A-1100, Y-9078, Z-6040, S3076S.

Einige der grenzflächenaktiven Nichtsilan-Siliconmittel (Gruppe B) führten zu einer leichten Abnahme der physikalischen Eigenschaften der Polycarbonatmasse insgesamt (Tabelle XVII).

Vormischen der behandelten Cenokügelchen zur Erzielung von Homogenität und anschließende Ofentrocknung vor dem Einarbeiten in die Polycarbonatmassen führt zu einer beträchtlichen Steigerung aller physikalischen Eigenschaften, ausgenommen eine geringfügige Gesamtabnahme des Biegemodul (Tabelle XX).

Im allgemeinen scheint die Vorbehandlung der Cenokügelchen mit den vorgenannten Typen grenzflächenaktiver Mittel die physikalischen Eigenschaften der Polycarbonatmasse insgesamt bei Konzentrationen von bis zu etwa 2 Gew.-%, bezogen auf die Menge an eingesetzten Cenokügelchen, zu verbessern, und die Silicone scheinen zu Polycarbonatmassen mit erheblich verbesserten physikalischen Eigenschaften insgesamt zu führen.